放射能測定による岩石の U, Th の定量 (その1)*

初田 甚一郎, 西村 進**

京都大学理学部地質学鉱物学教室, **大阪府立大学教養部地学教室

1965年8月25日 受理

岩石中の微量の U, Th, K の定量は地質学上重要な意味をもっている。いままで用いられている方法は γ -ray spectrometry による方法であるが, この設備はかなり高価で, 測定時間も長く必要とする。この点を考慮して, このたび, 岩石試料用 radioscope と α -scintillation counter を併用して U, Th 量を求める方法を考えたので報告するとともに, 地質学上興味ある1つの応用例を示した。この方法は, さらに改良し, ほかの方法も加味して, 非平衡の場合も考えて順次報告する予定である。

1. 緒 言

現在, 岩石中の発熱量の問題は地質学, 地球物理学上重要になってきている。いままで岩石中の U, Th の定量はその含有量が少ないため種々の方法が考案され実施されて^{1), 2), 3)}いるが, まだまだ検討し改良する余地がある。このたび岩石のように U, Th の含有量の少ないとき, できるかぎり処理を少なくして, 能率的, かつ正確に測定できる方法の一試案を得たのでここに発表する。しかしこの方法もさらに検討改良を加

えていくつもりである。

2. 岩石中の微弱放射能

岩石を粉砕して放射能を測定する場合, その崩壊数を測定する方法とその電離度を測定する方法とがある。いま, 火成岩の平均 U, Th 含有量と放射平衡を仮定して, それらから計算される岩石 1g あたりの α , β 放射線の数, およびこれらの放射線がすべて空気を電離したとするととき生成されるイオン対の数は次表に示すように非常にわずかである。

Table 1 Disintegration rate and specific ion-pair production in rocks

Rock	Concentration (ppm)			Disintegration rate (dps/g)		Ionpair production (ion pair/sec/g)	
	U	Th	K	alpha	beta	alpha	beta
Granite	4.0	14.8	35,000	0.776	0.645	12.4	1.96
Intermediate	2.0	7.4	18,000	0.388	0.324	6.19	0.985
Basalt	0.8	3.0	7,500	0.156	0.131	2.50	0.399
Eclogite	0.043	0.16	530	0.00836	0.00737	0.133	0.0228
Peridotite	0.006	0.022	10	0.00116	0.000847	0.0185	0.000344
Chondrite	0.01	0.037	830	0.00194	0.00366	0.0309	0.0129

このような微弱放射能の測定には種々の細かい点を考慮した方法をとる必要がある。とくに注意すべき事柄を列挙すると, (i)自然計数を少なくする, (ii)試料を多くする, (iii)外部吸収を少なくする, (iv)測定器の感度と安定性をよくする, (v)濃縮, そのほかの方法を併用するなどである。

3. α 放射能測定により岩石中の U, Th の定量を行なう一試案

岩石の微弱放射能の測定には比電離度の大きな点から α 線による方法が考えられるが, この場合とくに吸

収に注意を払う必要がある。岩石の微弱 α 放射能測定のためとくに初田が作った radioscope⁴⁾ と筆者らの指示により日本無線株式会社に製作した α -scintillation counter⁵⁾ を用いる方法を採用した。

3・1 Radioscope

岩石試料用 radioscope は Fig. 1 に示すようなもので, この使用法などについては前にくわしく発表している⁴⁾ のでここでは述べない。測定はまず mesh screen のみを用い全放射線による電離度 $S_{\alpha+\beta+\gamma}$ (div/min) を

* 第1回, 第2回理工学における同位元素研究発表会で発表 (1964年4月, 1965年4月)

測定し、つぎに 9.6 mg/cm^2 の Al 箔によって α 線をしゃへいして β, γ 線による電離度 $\bar{S}_{\beta+\gamma}$ (div/min) を測定して、その差

$$S_{\alpha} = S_{\alpha+\beta+\gamma} - \bar{S}_{\beta+\gamma} \quad (1)$$

- 1: Reading microscope
- 2: Charging device
- 3: Wooden cover
- 4: Dry agent
- 5: Lauritsen element
- 6: Aluminium foil or mesh screen
- 7: Sample

Fig. 1 Radioscope with Lauritsen element.

$$\bar{S}_{\beta+\gamma}/S_{\beta+\gamma} = \frac{\sum N \cdot F \cdot f_s \cdot f_A \cdot i (\text{for U series}) + \sum N \cdot F \cdot f_s \cdot f_A \cdot i (\text{for Th series}) + N \cdot F \cdot f_A \cdot f_s \cdot i (\text{for } ^{40}\text{K})}{\sum N \cdot F \cdot f_s \cdot i (\text{for U series}) + \sum N \cdot F \cdot f_s \cdot i (\text{for Th series}) + N \cdot F \cdot f_s \cdot i (\text{for } ^{40}\text{K})} \quad (2)$$

で表わされる。つぎに求めた各値 (Table 2) を代入すると $\bar{S}_{\beta+\gamma}/S_{\beta+\gamma} = 0.90$ で (1) がほぼ成立する。

Table 2 Correction coefficients for absorption of beta-rays by the aluminium foil and the source

Nuclide	i	F	f_A	f_s	Nuclide	i	F	f_A	f_s
U-series					AcU-series				
^{234}Th	96	1.0000	0.014	0.232	^{231}Th	75	1.0000	0.027	0.417
^{234}Pa	43	1.0000	0.479	0.960	^{227}Ac	116	0.988	0.000	0.002
^{214}Pb	49	0.9996	0.085	0.759	^{223}Fr	43	0.012	0.199	0.889
^{214}Bi	43	0.9996	0.608	0.975	^{211}Pb	42	1.0000	0.265	0.916
^{210}Pb	440	1.0000	0.000	0.000	^{207}Tl	42	1.9968	0.280	0.920
^{210}Bi	42	1.0000	0.204	0.321	Th-series				
^{40}K	42	0.89	0.248	0.910	^{226}Ra	870	1.0000	0.000	0.000
					^{225}Ac	88	1.0000	0.017	0.242
					^{212}Pb	42	0.663	0.458	0.958
					^{208}Tl	42	0.337	0.358	0.915

S_{α} はまた次式で表わされる。

$$S_{\alpha} = K_1 \left[U_1 \left\{ 0.96 \sum_{U_1} I_{U_1} G_{U_1} \frac{(R_{U_1} - h)^2}{R_{U_1}} + 0.04 \sum_{AcU} I_{AcU} G_{AcU} \frac{(R_{AcU} - h)^2}{R_{AcU}} \right\} + Th \sum_{Th} I_{Th} G_{Th} \frac{(R_{Th} - h)^2}{R_{Th}} \right] \quad (3)$$

ここで、 h は試料と電離槽の有効圏までの距離、 K_1 は器械、そのほか測定条件に関する係数、 R は各 α 線の空気中での飛程である。 G_{U_1} などは geometry に関

を α 放射線による電離度とした。

Al 箔のしゃへの影響は Fig. 2 に示すが、この図より 9.6 mg/cm^2 を採用したのである。しかし、この厚さでも β 放射線の一部はしゃへいされるので、どの程度の β 放射線がしゃへいされるかを検討するために、いま N を β -emissions/g/sec; F を分岐比; f_A, f_s をそれぞれ Al 箔による吸収係数、試料による自己吸収係数; i を各 β 線によって生じるイオン密度とすると $\bar{S}_{\beta+\gamma}$ と真の β 線と γ 線によって生じる電離度 $S_{\beta+\gamma}$ との比は

Fig. 2 The change of shifting rate of indicator with increasing thickness of aluminium alpha-ray absorber.

する係数で、Fig. 3 の截頭円錐の上端面を有効圏の下端面、下端面を試料面であるとする、

Fig. 3 Illustration figure showing solid angle relation of the sample and the window (the bottom circular area of the effective space) of the ionization chamber.

$$G_{U1} = \int_0^S \frac{\Omega}{4\pi} \cdot 2\pi y \cdot dy = \frac{1}{2} \int_l^R \Omega \cdot r \cdot dr$$

$$= \pi d^2 \left(\frac{l}{d} \right) \left[\frac{1}{2} \left(\frac{d}{l} - \frac{d}{R} \right) + \frac{3}{16} \left(\frac{d}{R} \right)^3 \left\{ \left(\frac{l}{R} \right)^2 - 1 \right\} \right.$$

$$\left. - \frac{5}{128} \left(\frac{d}{R} \right)^5 \left\{ 7 \left(\frac{l}{R} \right)^4 - 10 \left(\frac{l}{R} \right)^2 + 3 \right\} + \text{etc.} \right] \quad (4)$$

で表わされる⁵⁾。

NBSの標準試料で(3)式の $\sum_{U1} I_{U1} G_{U1} (R_{U1} - h)^2 / R_{U1}$, etc. を求めた結果

$$S_{\alpha'} = 0.067 (0.50 U' + 0.54 Th') \quad (5)$$

を得た。 $S_{\alpha'}$ は実際の測定値 ($= S_{\alpha} \times 113$; 試料面積 113 cm^2) で、 U' , Th' は ppm で表わした U, Th の量である。

3・2 岩石試料用 α -Scintillation counter

岩石試料用 α -scintillation counter は Fig. 4 に示すようなもので蛍光体は ZnS(Ag), 光電子倍增管は DuMont 6292 を用いた。この光電管から出るパルスを前置増幅器 (Aloka, PAM-7) を通じて波高分析器をそなえた汎用計数装置 (東京原子力工業, VS-105 III) で計数した。

この場合計数される α 放射線 $n(\text{count/sec/cm}^2)$ は初田, 永井⁶⁾の方法と同じ考えで求められて

Fig. 4 Alpha-ray scintillation counter.

$$n = \frac{K_2 \mu}{4} \left\{ N_{U1} \sum_{U1} \frac{(R_{U1} - \rho - a)^2}{R_{U1} - \rho} \right.$$

$$+ N_{AcU} \sum_{AcU} \frac{(R_{AcU} - \rho - a)^2}{R_{AcU} - \rho}$$

$$+ N_{Th} \sum_{Th} \frac{(R_{Th} - \rho - a)^2}{R_{Th} - \rho} \left. \right\} \quad (6)$$

で表わされる。 μ は α 粒子の試料中と空気中の飛程の比, R は各 α 粒子の空気中での飛程, ρ は最小検知飛程, a は吸収層の空気当量値, N は各親元素の原子数であり,

$$\left. \begin{aligned} N_{U1} &= 6.06 \times 10^{23} \cdot \lambda_{U1} \cdot U1 \cdot d / W_{U1} \\ N_{AcU} &= 6.06 \times 10^{23} \cdot \lambda_{AcU} \cdot AcU \cdot d / W_{AcU} \\ N_{Th} &= 6.06 \times 10^{23} \cdot \lambda_{Th} \cdot Th \cdot d / W_{Th} \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

で表わされる。ここで, W は原子量, $U1$, AcU , Th は各元素のグラム数, d は試料の密度, λ は各元素の壊変定数である。この関係を(6)に代入して

$$n = K_2 \cdot \mu \cdot d \cdot 10^3 \left\{ U1 \left\{ 3.11 \sum_{U1} \frac{(R_{U1} - \rho - a)^2}{R_{U1} - \rho} \right. \right.$$

$$+ 0.14 \sum_{AcU} \frac{(R_{AcU} - \rho - a)^2}{R_{AcU} - \rho} \left. \right\}$$

$$+ 1.03 Th \sum_{Th} \frac{(R_{Th} - \rho - a)^2}{R_{Th} - \rho} \left. \right\} \quad (8)$$

をうる。

3・2・1 μd の決定

α 粒子の permeability ψ は Bragg-Kleeman rule によると

$$\psi = a\sqrt{W_A} + b\sqrt{W_B} + c\sqrt{W_C} + \dots \quad (9)$$

で表わされる。ただし、A, B, C, ……原子の重量比を $a, b, c, \dots$ とした。このように表わしたとき(6)式の μ は

$$\mu = \frac{0.001226}{3.839} \cdot \frac{\psi}{d}$$

$$\text{または } \mu d = 3.194 \times 10^{-4} \cdot \psi \quad (10)$$

で表わされる。

各岩石の $\psi, \mu d$ を各成分より計算した結果 Table 3 の値を得た。

Table 3 Permeability ψ and the values of μd of several rocks

Rocks	ψ	$\mu d \times 10^{-3}$
Granite		
NBS Milford granite	4.69	1.50
Rokko granite	4.69	1.50
Tanakami granite	4.55	1.45
Hira granite	4.75	1.52
Hiei granite	4.75	1.52
Ryoke granite	4.65	1.49
mean		1.50 $\pm$ 0.01
Basalt NBS Deccan Trap	5.02	1.60
Andesite Sakurajima lava		
Atagoyama lava	4.74	1.51
Kitadake lava	4.78	1.53
Bummei lava	4.76	1.52
Anei lava	4.74	1.52
Taishō lava	4.74	1.51
Shōwa lava	4.79	1.53
mean		1.52 $\pm$ 0.003

3・2・2 ρ, a, K_2 の決定

ρ, a を決定するために純酸化 ウラン $7.53 \times 10^{-3} \text{g/g}$ を含んだ粉末の borax glass powder を“厚い試料”として用い、つぎのようにして求めた。

Table 4 The content of U and Th in Ra-standard rocks determined by two different methods assuming the radioactive equilibrium

Rock sample	U(ppm)	Th (ppm)	
	Calculated from Ra-content	Determined by α -scintillation counter	Determined by radioscope
Graniteville granite (NBS)	10.0	3.4	3.4
Milford granite (NBS)	0.8(0.8)*	9.0(9.0)*	9.0
Deccan Trap (NBS)	0.6(0.7)*	2.0(2.8)*	2.0
Biotite granite (Asayama)**	4.7	18.2	16.8

* The parenthesized values are those obtained by Hurley (loc.cit.).

** This value was obtained by T.Asayama, Prof. of University of Osaka Prefecture.

いま 3.4μ の Al 箔を m, n 枚重ねたときの計数値を n_m, n_n とすれば

$$\begin{aligned} \frac{n_m}{n_n} &= \frac{\frac{(R_{U1}-\rho-ma)^2}{R_{U1}-\rho} + \frac{(R_{U11}-\rho-ma)^2}{R_{U11}-\rho}}{\frac{(R_{U1}-\rho-na)^2}{R_{U1}-\rho} + \frac{(R_{U11}-\rho-na)^2}{R_{U11}-\rho}} \\ &= \frac{(R_{U1}-\rho-ma)^2 + (R_{U11}-\rho-ma)^2}{(R_{U1}-\rho-na)^2 + (R_{U11}-\rho-na)^2} \quad (11) \end{aligned}$$

この式より6回の測定によって ρ と a の最確値をもとめて

$$\left. \begin{aligned} a &= 0.78 \pm 0.02 \\ \rho &= 1.20 \pm 0.05 \text{ (in cm)} \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

を得た。これらの値から平衡状態の各 α 粒子に対して計算で求めた結果

$$\left. \begin{aligned} \sum_i \frac{(R_{U1}-\rho-a)^2}{R_{U1}-\rho} &= 13.66 \\ \sum_{AcU} \frac{(R_{AcU}-\rho-a)^2}{R_{AcU}-\rho} &= 16.97 \\ \sum_{Th} \frac{(R_{Th}-\rho-a)^2}{R_{Th}-\rho} &= 15.18 \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

ゆえに、(8)式はつぎのようになる。

$$\begin{aligned} n &= K_2 \cdot \mu d \cdot 10^3 (44.86UI + 15.64Th) \\ &= 1.5 \cdot K_2 (44.86UI + 15.64Th) \quad (14) \end{aligned}$$

NBS Milford granite を標準試料として測定した結果

$$K_2 = 2.5 \pm 0.2 \quad (15)$$

を得た。ゆえに、(14)式はさらに

$$n = 3.7 (44.86UI + 15.64Th) \quad (16)$$

となる。実際の測定条件で計数値を n' とすれば

$$n' = 1.13U' + 0.392Th' \quad (17)$$

をうる。

3・3 (5)式と(17)式の検討

いま(5)式と(17)式の検討のためUの含有量のわかっている試料を用いて、(5),(17)各式によってTh量の決定をした結果を Table 4 に示すとこの表にあらわれているようにかなり良い結果を得た。

3・4 岩石試料用 Radioscope と α -scintillation counter を用いて岩石中の U, Th 量の決定

(5)式と(17)式を組み合わせることによって,

$$\left. \begin{aligned} Th' &= 40.7S' - 1.21n' \\ U' &= 29.9S' - 1.08Th' \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

を得, U, Th 量を決定しうる。

3・5 考察

この方法は(i)自然計数が非常に少ない。実際、花崗岩が 20 cpm に対して自然計数は 0.5 cpm 程度である。(ii)試料を多く用いるので平均値が得られやすい。(iii) γ -energy analyser による U, Th 量の決定よりも非常に速く測定できる。(iv)2つの測定器の精度、感度が異なるが、各測定値に対する U, Th の感度の差異が大きいののでかなり精度を上げることができる——などの利点が認められるが、radioscope の操作、測定が非常にむずかしいので万人向きでない欠点があるため、将来振動容量型電位計を用いることを計画中である。しかし、この方法でも玄武岩より含有量の少ないときはむずかしいので、現在、京都大学原子炉で中性子を照射した後 α 放射能測定による方法を試験中である。さらに、この方法は放射平衡の仮定があるため非平衡の問題も検討中である。これらの結果は順次報告していくつもりである。

3・6 応用例

筆者らは1955年ころより花崗岩接触部の放射能分布の研究を進めて来た^{4), 7)~10)}。その結果、放射能分布より花崗岩を5つの型に分けた (Fig. 5), (Table 5)。そのうち、I型の鹿跳の接触部(田ノ上岩体、滋賀県)、木屋の接触部(木屋岩体、京都府)で10 cm おきに約 100 g ずつ採集した試料につき応用した結果 Fig. 6 のようになる。この結果から以上の型はUの分布の仕方による分類であって、Th は各型について分布の仕方があまり変わらないことがわかり、地質学的

Fig. 5 Types of alpha-radioactivity distribution across igneous contacts.

条件、地球化学的条件を加味し考えた結果、花崗岩の貫入の状態を知る大きな手がかりを得た。

Table 5 Radioactivity types and localities

Radioactivity types	Localities
I	Tanakami, Shiga Pref.; Hira, Shiga Pref.; Tamano, Okayama Pref.; Mikata, Fukui Pref.
II	Tokuyama (south part), Yamaguchi Pref.; Itozaki, Hiroshima Pref.; Kameoka, Kyoto Pref.; Hiei, Kyoto Pref.; Okazaki (two mica granite), Aichi Pref.;
II ~ III	Abukuma, Fukushima Pref.; Tokuyama (north part), Yamaguchi Pref.; Matsuyama, Ehime Pref.
III	Koya, Kyoto Pref.; Uwajima, Ehime Pref.
III ~ IV	Kitakami, Iwate Pref.; Takamizu, Yamaguchi Pref.
IV	Yagi, Kyoto Pref.
I'	Oike, Shiga Pref.; Hita, Oita Pref.; Takakumayama, Kagoshima Pref.

Fig. 6-1 The distributions of uranium (the upper figure) and thorium (the lower figure).

Fig. 6-2 The distributions of uranium (the upper figure) and thorium (the lower figure).

文 献

- 1) Hurley, P.M.: *Bull. Geol. Soc. Am.*, **67**, 395-412 (1956)
- 2) Adams, J.A.S., J.E. Richardson and C.C. Templeton: *Geochim. et Cosmochim. Acta*, **13**, 270-79 (1958)
- 3) Hamaguchi, H., G.W. Reed and A. Turkevich: *Geochim. et Cosmochim. Acta*, **12**, 337-47 (1957)
- 4) Hatuda, Z. and S. Nishimura: *Mem. Coll. Sci., Univ. Kyoto*, **23**, 285-95 (1956)
- 5) Hatuda, Z. and S. Nishimura: *Mem. Coll. Sci., Univ. Kyoto*, **31**, 215-26 (1965)
- 6) Hatuda, Z. and J. Nagai: *Mem. Coll. Sci., Univ. Kyoto*, **28**, 527-38 (1962)
- 7) Hatuda, Z. and S. Nishimura: *Mem. Coll. Sci., Univ. Kyoto*, **25**, 115-23 (1958)
- 8) Nishimura, S.: *Mem. Coll. Sci., Univ. Kyoto*, **28**, 255-64 (1961)
- 9) Nishimura, S.: *Mem. Coll. Sci., Univ. Kyoto*, **28**, 265-84 (1961)
- 10) Nishimura, S.: *Mem. Coll. Sci., Univ. Kyoto*, **31**, 227-38 (1965)

Abstract

A Trial Method of Determining Uranium and Thorium Content in Rocks by the Radioactive Measurements (1)

Zin'itiro HATUDA and Susumu NISHIMURA*

Geological and Mineralogical Institute, University of Kyoto,

*Institute of Geological Science, University of Osaka Prefecture

The Determination of the content of uranium, thorium and potassium in rocks is a matter of great concern for the geologist. The usual method, using the gamma-ray pulse height analyser, requires not only relatively expensive apparatus, but also considerable time. This is especially true when the samples have a feeble radioactivity, such as in rocks. In this paper, described is a first approach of obtaining the content of uranium and thorium by means of the parallel measurements with alpha-scintillation counter and a radioscope. As an example, variations in the content of uranium and thorium across igneous contacts were traced with continuous samples by the use of this method.